

File 351:Derwent WPI 1963-2005/UD,UM &UP=200503

(c) 2005 Thomson Derwent

*File 351: For more current information, include File 331 in your search.
Enter HELP NEWS 331 for details.

1/5/1

DIALOG(R) File 351:Derwent WPI
(c) 2005 Thomson Derwent. All rts. reserv.

014585700

WPI Acc No: 2002-406404/200244

XRAM Acc No: C02-114291

XRXPX Acc No: N02-319050

Production of carbon nanotubes from carbon compounds (I) involves using organo-transition metal compound containing (alkyl)cyclopentadienyl and/or carbonyl groups as catalyst

Patent Assignee: INFINEON TECHNOLOGIES AG (INFN)

Inventor: UNGER E

Number of Countries: 001 Number of Patents: 001

Patent Family:

| Patent No | Kind | Date | Applicat No | Kind | Date | Week |
|-------------|------|----------|-------------|------|----------|----------|
| DE 10043891 | A1 | 20020404 | DE 1043891 | A | 20000906 | 200244 B |

Priority Applications (No Type Date): DE 1043891 A 20000906

Patent Details:

| Patent No | Kind | Lan Pg | Main IPC | Filing Notes |
|-----------|------|--------|----------|--------------|
|-----------|------|--------|----------|--------------|

| | | | | |
|-------------|----|---|-------------|--|
| DE 10043891 | A1 | 5 | C01B-031/02 | |
|-------------|----|---|-------------|--|

Abstract (Basic): DE 10043891 A1

NOVELTY - Production of carbon (C) nanotubes from compounds (I) containing C uses organo-transition metal compound(s) (II) containing (alkyl)cyclopentadienyl and/or carbonyl groups.

DETAILED DESCRIPTION - Production of carbon (C) nanotubes from compounds (I) containing C uses organo-transition metal compound(s) of formula ((Cp)_xMn(CO)_y)_z (II) containing (alkyl)cyclopentadienyl and/or carbonyl groups.

Cp=cyclopentadienyl or alkylcyclopentadienyl group;

M=transition metal;

n=1, 2 or 3;

x=0, 1 or 2;

y=0-8;

z=1 or 2.

USE - None given.

ADVANTAGE - The production of carbon nanotubes using existing catalysts is very costly. The present catalysts have higher activity, make the production of carbon nanotubes simple and increase the yield.

pp; 5 DwgNo 0/1

Title Terms: PRODUCE; CARBON; CARBON; COMPOUND; ORGANO; TRANSITION; METAL; COMPOUND; CONTAIN; ALKYL; CYCLOPENTADIENYL; CARBONYL; GROUP; CATALYST

Derwent Class: E12; E36; L02; Q68; U11; U12

International Patent Class (Main): C01B-031/02

International Patent Class (Additional): B82B-003/00; D01F-009/12

File Segment: CPI; EPI; EngPI



⑯ BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

⑯ Offenlegungsschrift
⑯ DE 100 43 891 A 1

⑯ Int. Cl.⁷:
C 01 B 31/02
B 82 B 3/00
D 01 F 9/12

⑰ Anmelder:
Infineon Technologies AG, 81669 München, DE

⑯ Vertreter:
Viering, Jentschura & Partner, 80538 München

⑰ Erfinder:
Unger, Eugen, 86161 Augsburg, DE

⑯ Entgegenhaltungen:
DE 197 40 389 A1
DE 41 17 880 A1
US 537 44 145 A
WO 99 06 618 A1

Patent abstracts of Japan (C) 1998, 2000 JPO:
JP 61-132507 A;
Patent abstracts of Japan (C) 1994, JPO:
JP 06-322615 A;

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

- ⑯ Verfahren zur Herstellung von Kohlenstoff-Nanoröhren
 ⑯ Ein Verfahren zum Herstellen von Kohlenstoff-Nanoröhren aus kohlenstoffhaltigen Verbindungen ist offenbar, bei dem zumindest eine Übergangsmetallorganische Verbindung der allgemeinen Formel [(Cp)_xM_n(CO)_y]_z verwendet wird, wobei Cp eine Cyclopentadienylgruppe oder eine alkylsubstituierte Cyclopentadienylgruppe und M ein Metall der Übergangsmetallreihe ist; n = 1, 2, 3; x = 0, 1, 2; y = 0, 1, 2...8; z = 1, 2.

DE 100 43 891 A 1

DE 100 43 891 A 1

Beschreibung

- [0001] Die Erfindung betrifft die Herstellung von Kohlenstoff-Nanoröhren.
- [0002] Abscheideverfahren aus der Gasphase (Chemical Vapor Deposition, CVD) sind als Herstellungsverfahren unter anderem auch für Kohlenstoff-Nanoröhren bekannt [1]. Zum Beispiel haben Dai et al. über die Disproportionierung von Kohlenstoffmonoxid an in ihrer Größe vorselektierten Mo-Katalysatoren berichtet [2]. Nach Kong et al. lassen sich Kohlenstoff-Nanoröhren auch auf speziell mittels Lift-off-Verfahren strukturierten Oberflächen herstellen [3]. Hier wird entweder Sputterabscheiden oder selektives Ätzen verwendet, um eine katalytische Oberfläche auf einem festen Substrat zu bilden. Der hierbei verwendete Katalysatorvorläufer ist $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, der auf einer Aluminiumoxidmatrix als Träger aufgebracht und zusammen mit $\text{MoO}_2(\text{acac})_2$ eingesetzt wird. CVD wird sodann mit Methan als Kohlenstoffquelle durchgeführt.
- [0003] Kong et al. berichten weiterhin über ein CVD-Verfahren zum Herstellen von Kohlenstoff-Nanoröhren [4]. Hierbei wird Methan als Kohlenstoffquelle verwendet und als Katalysatorvorläufer werden Fe_2O_3 , NiO , CoO , NiO/CoO auf einer Trägermatrix verwendet.
- [0004] Bei weiteren bekannten Verfahren zum Herstellen von Kohlenstoff-Nanoröhren mittels CVD werden dünne Metallschichten aus z. B. Nickel oder Eisen, anorganische Salze verschiedener Übergangsmetalle wie Ni, Fe, Y, Co, Ru, Pt, Mo, die vor der Reaktion zu dem Metallen reduziert werden, mit und ohne $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ als tragende Matrix eingesetzt.
- [0005] Die bisher in den Verfahren eingesetzten Katalysatoren gestalten jedoch die Synthese der Kohlenstoff-Nanoröhren mit nur mit großem Aufwand.
- [0006] Somit liegt der Erfindung das Problem zugrunde, ein Verfahren zur Herstellung von Kohlenstoff-Nanoröhren bereitzustellen, das die Herstellung der gewünschten Kohlenstoff-Nanoröhren mit einfachen Mitteln und in größerer Ausbeute ermöglicht.
- [0007] Erfnungsgemäß wird dies dadurch erreicht, dass in dem Verfahren zur Herstellung von Kohlenstoff-Nanoröhren Katalysatoren verwendet werden, die eine höhere katalytische Aktivität besitzen.
- [0008] Erfnungsgemäß wird obiges Ziel mit einem Verfahren zur Herstellung von Kohlenstoff-Nanoröhren erreicht, bei dem zumindest eine Übergangsmetallorganische Verbindung der allgemeinen Formel $[(\text{Cp})_x\text{M}_n(\text{CO})_y]_z$ verwendet wird, wobei Cp eine Cyclopentadienylgruppe oder eine alkylsubstituierte Cyclopentadienylgruppe und M ein Metall der Übergangsmetallreihe ist; $n = 1, 2, 3$; $x = 0, 1, 2$; $y = 1, 2, \dots, 8$; $z = 1, 2$.
- [0009] Bei dem erfungsgemäßen Verfahren kann die Übergangsmetallorganische Verbindung als Vorstufe eines Katalysators zur Herstellung von Kohlenstoff-Nanoröhren verwendet werden. Wird die Übergangsmetallorganische Verbindung einer geeigneten Behandlung, z. B. einem Heizverfahren unterzogen, so wird sie direkt zur katalytischen Form aktiviert, was zusätzliche Reduktionsschritte zu diesem Zweck, wie sie sich bei herkömmlichen Katalysatoren für Kohlenstoffröhren durch Einsatz von Wasserstoff oder Kohlenwasserstoffen ergeben, unnötig macht. Ein wichtiger Vorteil bei einer Aktivierung solcher Übergangsmetallorganischer Verbindungen besteht zusätzlich darin, dass der anfangs an dem Metall gebundenen Kohlenstoff als geeignete Ausgangspezies für die sich bildenden Kohlenstoff-Nanoröhren dienen kann.
- [0010] Bevorzugt kann das erfungsgemäße Verfahren ein Abscheidungsverfahren aus der Gasphase (Chemical Va-
- por Deposition, CVD) sein, bei dem die Übergangsmetallorganische Verbindung als eine Art Katalysatorvorstufe funktioniert, die zur katalytisch aktiven Form aktiviert wird.
- [0011] Als Übergangsmetall in der Übergangsmetallorganischen Verbindung kann vorzugsweise Fe, Ni, Y, Co, Ru, Pt, Mo, V oder Mn verwendet werden. Hierzu sind Fe wie beispielsweise im Komplex $[\text{CpFe}(\text{CO})_2]_2$, Mn wie beispielsweise im Komplex $\text{CpMn}(\text{CO})_3$, und Co wie beispielsweise im Komplex $\text{CpCo}_2(\text{CO})_8$ besonders bevorzugt.
- [0012] Bei dem Verfahren kann es zum Handhaben der Übergangsmetallorganischen Verbindung vorteilhaft sein, diese zunächst in einem Lösungsmittel zu lösen. Bevorzugt wird zumindest eine Übergangsmetallorganische Verbindung in einer Konzentration von 1 mMol/l bis zur Löslichkeitsgrenze in dem betreffenden Lösungsmittel. Danach dieses Lösungsmittel später vollständig entfernt werden kann, ist es auch von Vorteil, wenn es ein leicht verdampfbares Lösungsmittel ist. Als leicht verdampfbare Lösungsmittel können z. B. die Lösungsmittel Dichlormethan, Chloroform, Kohlenstofftetrachlorid, THF, Furan, Et_2O , Pentan oder Hexan verwendet werden. Welches Lösungsmittel verwendet wird, hängt von der Löslichkeit und der Stabilität der zu lösenden Übergangsmetallorganischen Verbindung ab. Um das Lösen dieser Verbindung zu fördern, kann auch eine Mischung zweier oder mehrerer dieser leicht verdampfbaren Lösungsmittel verwendet werden.
- [0013] Diese Lösung kann dann nachfolgend auf ein Substrat aufgebracht werden, wobei als Substrat insbesondere Si und SiO_2 verwendet werden können. Im Rahmen der Erfindung kann ein solches Aufbringen mit einer Makro- oder Mikropipette, einer Sprühdüse oder einer Applizierwalze durchgeführt werden, wobei eine Mikropipette besonders bevorzugt ist. Die tropfenweise Aufbringung der Lösung auf das Substrat hat gegenüber der schichtweisen Aufbringung den Vorteil, dass sich beim Ersten nach der CVD-Synthese der Kohlenstoff-Nanoröhren das Syntheserohr der fertigen Nanoröhren leichter feststellen lässt, was die Wiedergewinnung und/oder ggf. die weitere Aufarbeitung der Kohlenstoff-Nanoröhren wesentlich vereinfacht.
- [0014] Im Anschluss an das Aufbringen der die Übergangsmetallorganische Verbindung enthaltende Lösung auf ein Substrat kann das Lösungsmittel oder die Mischung zweier oder mehrerer Lösungsmittel verdampft werden. Hierbei ist von Vorteil, wenn die Verdampfung bei Raumtemperatur oder bei einer Temperatur erfolgt, die 70°C nicht übersteigt. Bei eventuell schwerer verdampfbaren Lösungsmittelmischungen kann beim Verdampfen der umgebende Druck reduziert werden, um höhere Temperaturen bei der Verdampfung zu vermeiden. Bei der Verdampfung sollen höhere Temperaturen vermieden werden, damit die Übergangsmetallorganische Verbindung nicht vorzeitig, d. h. vor der Abscheidungsreaktion zur katalytisch aktiven Form aktiviert wird, was sonst die letztendliche Ausbeute an Kohlenstoff-Nanoröhren beeinträchtigen könnte.
- [0015] Nach der Verdampfung des Lösungsmittels oder der Lösungsmittelmischung auf dem Substrat kann erfungsgemäß das Substrat in einem Abscheidungsreaktor aufgeheizt werden. Dies erfolgt bei einer Temperatur, die ausreichend ist, um die Übergangsmetallorganische Verbindungs-Katalysatorvorstufe zur katalytisch aktiven Spezies zu aktivieren. Zur Aktivierung kann es zweckmäßig sein, das Aufheizen des Substrats bei einer Temperatur von $500-900^\circ\text{C}$ durchzuführen. So wird gewährleistet, dass die auf dem Substrat aufgebrachte Übergangsmetallorganische Verbindung effektiv zu ihrer aktiven Form konvertiert wird. Es ist anzumerken, dass durch eine solche Aktivierung sofort die katalytisch aktive Spezies in sehr feiner Verteilung ohne weitere Reduktionsschritte entsteht.

[0016] Nach dem Aufheizen des Substrats im Abscheidungsreaktor kann im Rahmen des erfindungsgemäßen Verfahrens der Abscheidungsreaktor als Vorbereitung auf das nachgeschaltete Abscheidungsverfahren gesäubert werden. Dies kann beispielsweise erfolgen, indem der Abscheidungsreaktor mit einem Spülgas gespült werden. Das zum Spülen des Abscheidungsreaktors verwendete Spülgas kann ein Inertgas, vorzugsweise ein Edelgas wie Argon oder N₂ sein. Alternativ kann die Säuberung durch Evakuierung des Abscheidungsreaktors erfolgen.

[0017] Im Anschluss an das Säubern des Abscheidungsreaktors mit einem Inertgas kann ein für CVD-Verfahren übliches Reaktionsgas in den Abscheidungsreaktor geleitet werden, z. B. ein Kohlenwasserstoffgas. Hierbei kommt beispielsweise Methan, Ethylen, Benzol oder Acetylen in Betracht. Alternativ zu dem Kohlenwasserstoffreaktionsgas kann erfindungsgemäß auch Kohlenstoffmonoxid als Reaktionsgas in den Abscheidungsreaktor geleitet werden. Da bereits durch das Aufheizen des Substrats die katalytisch reaktive Spezies der Übergangsmetallorganischen Verbindung gebildet wurde, beginnt die Abscheidungsreaktion sofort mit Zuschalten des Reaktionsgases. Um die Abscheidungsreaktion zu begünstigen soll erfindungsgemäß innerhalb des Abscheidungsreaktor eine Temperatur von 500 bis 900°C und einen Druck von 1,3 bis 100.000 Pa beibehalten werden.

[0018] Weitere Merkmale und Vorteile der Erfindung werden nachfolgend anhand der Fig. 1 beschrieben. In der Zeichnung zeigt:

[0019] Fig. 1A die schematische Darstellung einer Lösung einer gemäß einem Ausführungsbeispiel der Erfindung als Katalysatorvorstufe zu verwendenden Übergangsmetallorganischen Verbindung.

[0020] Fig. 1B das Ergebnis einer tropfweisen Aufbringung der Lösung von Fig. 1A auf einem Substrat.

[0021] Fig. 1C das Ergebnis des Verdampfens des Lösungsmittels von Fig. 1B.

[0022] Figs. 1D bis 1F ein Flussdiagramm weiterer Verfahrensschritte gemäß einem Ausführungsbeispiel der Erfindung.

[0023] Fig. 1A zeigt einen Behälter 100 mit einem Lösungsmittel 101, in dem die nicht oder kaum flüchtige Übergangsmetallorganische Verbindung 102 bereits gelöst ist.

[0024] Das Lösungsmittel 101 ist leicht verdampfbar, d. h. es lässt sich schon bei Raumtemperatur oder bei einer Temperatur, die unterhalb 70°C liegt, vollständig verdampfen. Als mögliche leicht verdampfbare Lösungsmittel können beispielsweise Dichlormethan, Chloroform, Kohlenstofftetrachlorid, THF, Furan, Et₂O, Pentan, Hexan oder eine Mischung zweier oder mehrerer dieser Lösungsmittel verwendet werden. Welches Lösungsmittel bzw. welche Lösungsmittelmischung verwendet wird, hängt von der Löslichkeit und der Stabilität der jeweiligen, letztendlich als CVD-Katalysatorvorstufe zu verwendenden Übergangsmetallorganischen Verbindung ab. Wichtig ist lediglich, dass das gewählte Lösungsmittel bzw. die gewählte Lösungsmittelmischung sich bei niedriger Temperatur, d. h. bei Raumtemperatur oder bei einer Temperatur, die 70°C nicht übersteigt, vollständig verdampfen lässt.

[0025] Fig. 1B zeigt das Substrat 103 und Tropfen 104 der Lösung aus Fig. 1A, die auf dem Substrat 103 punktweise aufgebracht sind. Solche Tropfen 104 können mittels eines herkömmlichen Makro- oder Mikrodispersiergeräts auf das Substrat aufgebracht werden.

[0026] Alternativ kann die Lösung aus Fig. 1A schichtweise mittels einer Sprühdüse oder mittels einer Applizierwalze auf das Substrat 103 aufgebracht werden (nicht gezeigt). Die tropfenweise Aufbringung der Lösung aus Fig.

1A hat gegenüber der schichtweisen Aufbringung auf das Substrat 103 (nicht gezeigt) den Vorteil, dass sich beim Erstern nach der CVD-Synthese der Kohlenstoff-Nanoröhren der Syntheseort der fertigen Nanoröhren leichter feststellen lässt, was die Wiedergewinnung und/oder ggf. die weitere Aufarbeitung der Kohlenstoff-Nanoröhren wesentlich vereinfacht.

[0027] Fig. 1C zeigt den Zustand des Substrats 103 nach Verdampfen des leicht verdampfbaren Lösungsmittels 101 bzw. der Lösungsmittelmischung von dessen Oberfläche.

[0028] Moleküle der Übergangsmetallorganischen Verbindung, die nach Aktivierung letztendlich als Katalysatoren im CVD-Verfahren dienen sollen, sind schematisch als Punkte 105 auf der Oberfläche des Substrats 103 dargestellt. Das Verdampfen des leicht verdampfbaren Lösungsmittels 101 kann je nach Lösungsmittel entweder bei Raumtemperatur oder bei einer Temperatur, die 70 °C nicht übersteigt, durchgeführt werden. Alternativ können Kombinationen von niedrigeren Temperaturen und reduzierten Drucken eingesetzt werden, um das Verdampfen bei niedriger Temperatur zu ermöglichen. Oberhalb etwa 70°C liegende Temperaturen sollen zum Verdampfen jedoch vermieden werden, um eine vorzeitige Aktivierung der Übergangsmetallorganischen Verbindungen, die später als CVD-Katalysatoren dienen sollen, zu verhindern.

[0029] Es ist anzumerken, dass bei dem erfindungsgemäß Verfahren keine vorherige Strukturierung der Übergangsmetallorganischen Verbindung vorgesehen ist. Vielmehr ermöglicht das leichte Pipettieren das einfache Auf-

[0030] bringen der die Übergangsmetallorganischen Verbindung enthaltenden Lösung auf das Substrat 103 und damit eine wesentlich vereinfachte Präparierung des Letzteren als es bisher möglich war. Da die Übergangsmetallorganischen Verbindungen, die letztendlich als Katalysatoren bei der CVD-Reaktion dienen sollen, bereits Kohlenstoffatome in Form der Carbonylgruppe(n), bzw. Cyclopentadienylgruppe(n) aufweisen, besitzt die Katalysatorvorstufe selbst eine günstige Zusammensetzung, von der aus sich Kohlenstoff-Nanoröhren auf dem aktiven Katalysator ausbilden können.

[0031] In Verbindung mit der bereits erwähnten, problemlosen Applizierung der Übergangsmetallorganischen Verbindung in flüssiger Form auf die Oberfläche des Substrats 103 wird somit ein Grad des Streamlinings bei der CVD-Synthese von Kohlenstoff-Nanoröhren erreicht, der sich gegenüber den arbeits- und zeitintensiven CVD-Verfahren des Standes der Technik als vorteilhaft erheblich abhebt.

[0032] Figs. 1D bis 1F stellen in Form eines Flussdiagramms die weiteren Verfahrensschritte gemäß einem Ausführungsform der Erfindung dar. Nachdem das Substrat 103 mit den darauf aufgebrachten Übergangsmetallorganischen Verbindungs molekülen 105 in einem Abscheidungsreaktor angeordnet worden ist, wird das Substrat 103 aufgeheizt, um die Übergangsmetallorganischen Verbindungen zu aktivieren (Schritt 106). Dieses Aufheizen des mit der Lösung auf Fig. 1A behandelten Substrats zum Aktivieren erfolgt bevorzugt bei 500 bis 900°C. Nach Gasspülung mit vorzugsweise einem Inertgas wie beispielsweise N₂ oder Ar (Schritt 107), startet die Synthese der Kohlenstoff-Nanoröhren sofort mit Zuschalten des Reaktionsgases, wie beispielsweise

Methan, Ethylen, Acetylen, Benzol oder Kohlenstoffmonoxid (Schritt 108). Dabei wird die Temperatur bei 500 bis 900°C beibehalten und der Druck wird auf 1,3 bis 100.000 Pa eingestellt. Auf diese Weise werden die Kohlenstoff-Nanoröhren gebildet.

[0033] Nach der Synthese können die Kohlenstoff-Nanoröhren gewonnen werden.

[0034] In diesem Dokument sind folgende Veröffentlichungen zitiert:

- [1] P. M. Ajayan, Nanotubes from Carbon, Chem. Rev. 99, S. 1787–1799, 1999.
[2] H. Dai; A. G. Rinzler; P. Nikolaev; A. Thess; D. T. Colbert; R. E. Smalley, Chem. Phys. Lett. 260, S. 471, 1996.
[3] J. Kong; H. T. Soh; A. M. Cassell; C. F. Quate; H. Dai, Synthesis of individual single-walled carbon nanotubes on patterned silicon wafers, Nature 395, S. 878–881, 1998.
[4] J. Kong; A. M. Cassell; H. Dai, Chemical vapor deposition of methane for single-walled carbon nanotubes, Chem. Phys. Lett. 292, S. 567–574, 1998.

- Mischung dieser Lösungsmittel verwendet wird.
9. Verfahren nach Anspruch 7, bei dem das Aufbringen auf das Substrat mittels einer Dispensiertechnik erfolgt.
10. Verfahren nach Anspruch 9, bei dem als Dispensiertechnik Mikropipettieren verwendet wird.
11. Verfahren nach einem der Ansprüche Anspruch 7 bis 10, bei dem als Substrat Si oder SiO₂ verwendet wird.
12. Verfahren nach Anspruch 7, bei dem das Verdampfen des Lösungsmittels bei einer Temperatur erfolgt, die 70°C nicht übersteigt.
13. Verfahren nach einem der Ansprüche 7 bis 12, bei dem das Verdampfen bei reduziertem Druck erfolgt.
14. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 13, bei dem nach dem ersten Schritt des Lösen, des Aufbringens und des Verdampfens als zweiter Schritt der Aktivierungsschritt erfolgt.
15. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 14, bei dem zum Aktivieren der Übergangsmetallorganischen Verbindung auf dem Substrat dieses in einem Abscheidungsreaktor aufgeheizt wird.
16. Verfahren nach Anspruch 15, bei dem das Aufheizen bei einer Temperatur von 500 bis 900°C durchgeführt erfolgt.
17. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 16, bei dem nach dem zweiten Schritt des Aufheizens in einem dritten Schritt der Abscheidungsreaktor gesäubert wird, ein Reaktionsgas in den Abscheidungsreaktor geleitet wird und im Abscheidungsreaktor auf Reaktionsbedingungen eingestellt wird.
18. Verfahren nach Anspruch 17, bei dem zum Säubern der Abscheidungsreaktor mit einem Inertgas gespült wird.
19. Verfahren nach Anspruch 18, bei dem als Inertgas ein Edelgas oder Stickstoff verwendet wird.
20. Verfahren nach Anspruch 19, bei dem als Edelgas Argon verwendet wird.
21. Verfahren nach Anspruch 17, bei dem zum Säubern der Abscheidungsreaktor evakuiert wird.
22. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 21, bei dem als Reaktionsgas ein Kohlenstoff enthaltendes Gas verwendet wird.
23. Verfahren nach Anspruch 22, bei dem als Kohlenstoff enthaltendes Gas ein Kohlenwasserstoffgas oder Kohlenmonoxid verwendet wird.
24. Verfahren nach Anspruch 23, bei dem als Kohlenwasserstoffgas Methan, Ethylen, Benzol oder Acetylen verwendet wird.
25. Verfahren nach einem der Ansprüche 17 bis 24, bei dem das Einstellen auf Reaktionsbedingungen das Beibehalten der Temperatur von 500 bis 900°C umfasst.
26. Verfahren nach Anspruch 25, bei dem zusätzlich zu dem Beibehalten der Temperatur auf einen Druck von 1, 3 bis 100.000 Pa eingestellt wird.
27. Verfahren nach einem der Ansprüche 7 bis 26, bei dem die Konzentration der gelösten Übergangsmetallcarbonylverbindung 1 mMol/l bis zur Löslichkeitsgrenze im betreffenden Lösungsmittels beträgt.

Bezugszeichenliste

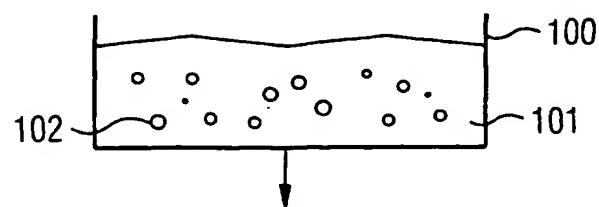
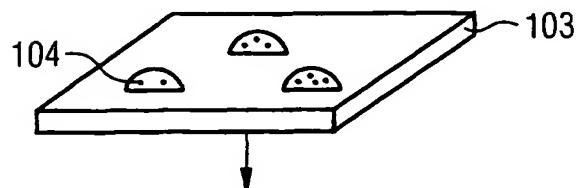
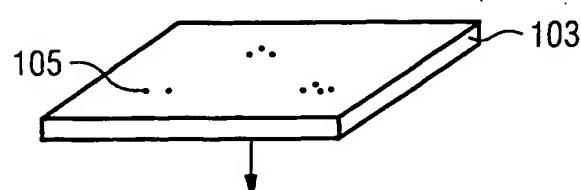
| | |
|--|----|
| 100 Behälter | |
| 101 leicht verdampfbares Lösungsmittel | 15 |
| 102 Molekül der im leicht verdampfbaren Lösungsmittel gelösten Übergangsmetallorganischen Verbindung | |
| 103 Substrat | |
| 104 auf dem Substrat aufgebrachter Lösungstropfen | |
| 105 auf dem Substrat aufgebrachtes Molekül der Übergangsmetallorganischen Verbindung | 20 |
| 106 Aktivierung der Katalysatorvorstufe | |
| 107 Säubern des Abscheidungsreaktors | |
| 108 Zuführen des Reaktionsgases und Aufheizen des Abscheidungsreaktors | 25 |

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Kohlenstoff-Nanoröhren aus kohlenstoffhaltigen Verbindungen, bei dem zumindest eine Übergangsmetallorganische Verbindung der allgemeinen Formel [(Cp)_xM_n(CO)_y]z verwendet wird, wobei Cp eine Cyclopentadienylgruppe oder eine alkylsubstituierte Cyclopentadienylgruppe und M ein Metall der Übergangsmetallreihen ist; n = 1, 2, 3; x = 0, 1, 2; y = 0, 1 . . . 8; z = 1, 2
2. Verfahren nach Anspruch 1, bei dem die zumindest eine Übergangsmetallorganische Verbindung der allgemeinen Formel [(Cp)_xM_n(CO)_y]z mit den in Anspruch 1 angegebenen Definitionen einem Aktivierungsschritt unterzogen wird, wobei die katalytisch wirksame Spezies gebildet wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, bei dem die kohlenstoffhaltigen Verbindungen unter den Reaktionsbedingungen flüchtig sind.
4. Verfahren nach Anspruch 3, bei dem das Verfahren ein Abscheideverfahren aus der Gasphase (Chemical Vapor Deposition, CVD) ist.
5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei dem als Metall Fe, Ni, Y, Co, Ru, Pt, Mo, V oder Mn verwendet wird.
6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei dem Cp die Cyclopentadienylgruppe ist, x = 2, M Fe ist, n = 1, y = 2 und z = 2;
Cp die alkylsubstituierte Cyclopentadienylgruppe ist, x = 1, M Mn ist, y = 3 und z = 1; oder
Cp die alkylsubstituierte Cyclopentadienylgruppe ist, x = 1, M Co ist, y = 8 und z = 1.
7. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 6, bei dem vor dem Aktivieren in einem ersten Schritt die Übergangsmetallorganische Verbindung in ein Lösungsmittel gelöst wird, diese Lösung auf ein Substrat aufgebracht wird und das Lösungsmittel vom Substrat verdampft wird.
8. Verfahren nach Anspruch 7, bei dem als Lösungsmittel Dichlormethan, Chloroform, Kohlenstofftetrachlorid, THF, Furan, Et₂O, Pentan, Hexan oder eine

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

- Leerseite -

FIG 1A**FIG 1B****FIG 1C****FIG 1D**

Aufheizen des Substrats im Abscheidungsreaktor, um die Übergangsmetall-carbonylverbindung zu aktivieren

FIG 1E

Säubern des Abscheidungsreaktors mit Inertgasspülung

FIG 1F

Zuführen des Reaktionsgases